



PATENT APPLICATION

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re application of

Docket No: Q76524

TOSAKI, Yutaka, et al.

Appln. No.: 10/616,916

Group Art Unit: 1714

Confirmation No.: 2409

Examiner: Not yet assigned

Filed: July 11, 2003

For: AQUEOUS DISPERSION TYPE PRESSURE-SENSITIVE ADHESIVE
COMPOSITION AND PRESSURE-SENSITIVE ADHESIVE PRODUCT

SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENT

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

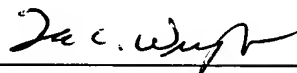
Sir:

Submitted herewith is a certified copy of the priority document Japan 2003-034518, on which claim to priority was made under 35 U.S.C. § 119. Additionally, priority is claimed from Japan 2002-047984, a certified copy of which was filed in parent application 10/364,371 on April 14, 2003.

Submission of Priority Document
USSN 10/616,916

The Examiner is respectfully requested to acknowledge receipt of said
priority documents.

Respectfully submitted,



Lee C. Wright
Registration No. 41,441

SUGHRUE MION, PLLC
Telephone: (202) 293-7060
Facsimile: (202) 293-7860

WASHINGTON OFFICE

23373

CUSTOMER NUMBER

Date: October 14, 2003

USSN: 10/616,916
Inventors: Yutaka TOSAKI et al
Filing date: July 11, 2003
Confirmation No. 2409

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 3 年 2 月 1 3 日
Date of Application:

出 願 番 号 特 願 2 0 0 3 - 0 3 4 5 1 8
Application Number:
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 3 - 0 3 4 5 1 8]

出 願 人 日 東 電 工 株 式 会 社
Applicant(s):

2 0 0 3 年 7 月 1 0 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎

出証番号 出証特 2 0 0 3 - 3 0 5 6 1 8 1

【書類名】 特許願

【整理番号】 P03ND010

【提出日】 平成15年 2月13日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C09J 7/02

【発明者】

 【住所又は居所】 大阪府茨木市下穂積一丁目一番2号 日東電工株式会社
 内

 【氏名】 戸崎 裕

【発明者】

 【住所又は居所】 大阪府茨木市下穂積一丁目一番2号 日東電工株式会社
 内

 【氏名】 長津 秀樹

【発明者】

 【住所又は居所】 大阪府茨木市下穂積一丁目一番2号 日東電工株式会社
 内

 【氏名】 河野 真一

【発明者】

 【住所又は居所】 大阪府茨木市下穂積一丁目一番2号 日東電工株式会社
 内

 【氏名】 矢田貝 隆浩

【特許出願人】

 【識別番号】 000003964

 【氏名又は名称】 日東電工株式会社

 【代表者】 竹本 正道

【代理人】

【識別番号】 100101362

【弁理士】

【氏名又は名称】 後藤 幸久

【電話番号】 06-6242-0320

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2002- 47984

【出願日】 平成14年 2月25日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 053718

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9802369

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 水分散型粘着剤組成物及び粘着製品

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 アクリル系又はゴム系の水分散型粘着剤組成物中の固形分 100 重量部に対して、重量平均分子量 20,000～5,000,000 のポリアルキレングリコールを 0.5～15 重量部含有することを特徴とする水分散型粘着剤組成物。

【請求項 2】 アクリル系又はゴム系の水分散型粘着剤組成物中の固形分 100 重量部に対して、ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール及びポリ（メタ）アクリル酸から選択された少なくとも一種の親水性ポリマーを 0.5～15 重量部含有することを特徴とする水分散型粘着剤組成物。

【請求項 3】 アクリル系の水分散型粘着剤組成物が、（メタ）アクリル酸 C₄₋₁₂アルキルエステルを単量体主成分とするアクリル系重合体をベースポリマーとして含有している請求項 1 又は 2 記載の水分散型粘着剤組成物。

【請求項 4】 親水性ポリマーの重量平均分子量が、500～5,000,000 である請求項 2 又は 3 記載の水分散型粘着剤組成物。

【請求項 5】 請求項 1～4 の何れかの項に記載の水分散型粘着剤組成物による粘着剤層を有することを特徴とする粘着製品。

【請求項 6】 水分散型粘着剤組成物による粘着剤層が、多孔性基材の少なくとも片面に形成されている請求項 5 記載の粘着製品。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、水分散型粘着剤組成物及び粘着製品に関する。

【0002】

【従来の技術】

粘着剤は、マスキングテープ、両面テープ、表面保護フィルム、包装用テープなどで広く用いられている。従来、粘着剤としては、環境対策、省資源、安全性などの観点から有機溶剤を使用しない水分散型粘着剤の開発が進んでおり、該水

分散型粘着剤の使用量も増える傾向にある。このような水分散型粘着剤の中でもゴム系の水分散型粘着剤は、被着体の選択性が少なく、低温での接着性にも優れていることなどから、現在最も多くの分野で使用されている。また、アクリル系の水分散型粘着剤は、その優れた接着特性、耐候性などの点から、従来のゴム系の水分散型粘着剤の代わりに広く普及してきている。

【 0 0 0 3 】

一方、例えば、マスキングテープは、塗装やシーリングなどの際に被着体をマスクするものであるが、梅雨時や、冬場の低温での作業時に被着体の表面が結露していると、貼り合わせ時に十分な接着力が得られず、ずれたり、剥がれたりすることがあり、作業性の低下を招いていた。また、両面テープなどでも、同様に結露面に対する作業があり、問題となっていた。

【 0 0 0 4 】

また、結露面に対して良好な接着性を示すものとして、水溶性ポリマーを主成分とする粘着テープも開示されているが、剥離時に吸水膨潤により溶出した低分子量成分による汚染や、凝集力不足による糊残りなどが起こり、満足な結果が得られていなかった。

【 0 0 0 5 】

さらに、湿度の高い場所における接着性、あるいは水、霜や氷などが付着した面への接着性が優れる感圧性接着剤として、エマルジョン重合して得られるアクリル酸エステル系共重合体に、重量平均分子量 1 8 0 ~ 1 1 0 0 のポリエチレングリコールを特定量配合した感圧性接着剤が知られている（特許文献 1 参照）。しかしながら、エマルジョン重合して得られるアクリル酸エステル系共重合体に、重量平均分子量 1 8 0 ~ 1 1 0 0 のポリエチレングリコールを配合した上記感圧性接着剤では、結露面などへの十分な初期粘着力が得られないという問題があった。

【 0 0 0 6 】

また、マスキングテープを被着体に貼った状態で数日放置される場合があるが、この間、テープ端面からゆっくりと剥離が進行し（定荷重剥離性）、再度作業する際の作業性の低下を招くことが問題となっていた。

【 0 0 0 7 】**【特許文献 1】**

特開昭 6 3 - 2 2 7 6 8 2 号公報

【 0 0 0 8 】**【発明が解決しようとする課題】**

従って、本発明の目的は、結露面や湿潤面に対する良好な初期粘着力を発現でき、また定荷重剥離性に優れた水分散型粘着剤組成物及び粘着製品を提供することにある。

【 0 0 0 9 】**【課題を解決するための手段】**

本発明者らは、上記の目的を達成するため鋭意検討した結果、水分散型粘着剤組成物に、特定のポリアルキレングリコール又は特定の親水性ポリマーを特定量添加すると、結露面や湿潤面に対する初期粘着力が向上し、さらには、定荷重剥離性も向上することを見出し、本発明を完成させた。

【 0 0 1 0 】

すなわち、本発明は、アクリル系又はゴム系の水分散型粘着剤組成物中の固形分 1 0 0 重量部に対して、重量平均分子量 2 0, 0 0 0 ~ 5, 0 0 0, 0 0 0 のポリアルキレングリコールを 0. 5 ~ 1 5 重量部含有することを特徴とする水分散型粘着剤組成物である。また、本発明は、アクリル系又はゴム系の水分散型粘着剤組成物中の固形分 1 0 0 重量部に対して、ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール及びポリ（メタ）アクリル酸から選択された少なくとも一種の親水性ポリマーを 0. 5 ~ 1 5 重量部含有することを特徴とする水分散型粘着剤組成物である。

【 0 0 1 1 】

前記アクリル系の水分散型粘着剤組成物は、（メタ）アクリル酸 C₄₋₁₂アルキルエステルを単量体主成分とするアクリル系重合体をベースポリマーとして含有していることが好ましい。また、親水性ポリマーの重量平均分子量が、5 0 0 ~ 5, 0 0 0, 0 0 0 であってもよい。

【 0 0 1 2 】

また、本発明は、前記水分散型粘着剤組成物による粘着剤層を有することを特徴とする粘着製品である。水分散型粘着剤組成物による粘着剤層が、多孔性基材の少なくとも片面に形成されていてもよい。

【0013】

【発明の実施の形態】

[水分散型粘着剤組成物]

アクリル系又はゴム系の水分散型粘着剤組成物には、アクリル系の水分散型粘着剤組成物と、ゴム系の水分散型粘着剤組成物とが含まれる。アクリル系又はゴム系の水分散型粘着剤組成物は単独で又は2種以上組み合わせて使用することができる。

【0014】

アクリル系の水分散型粘着剤組成物は、ベースポリマーとしてアクリル系重合体を含有するアクリル系粘着剤から構成されている。このようなアクリル系重合体は、(メタ)アクリル酸エステルを単量体の主成分として含有し、必要に応じて共重合性単量体を共重合成分として含有している。アクリル系重合体は単独で又は2種以上組み合わせて使用することができる。単量体主成分としての(メタ)アクリル酸エステルとしては、例えば、(メタ)アクリル酸C₄₋₁₂アルキルエステルを好適に用いることができる。

【0015】

前記(メタ)アクリル酸C₄₋₁₂アルキルエステルとしては、例えば、(メタ)アクリル酸n-ブチル、(メタ)アクリル酸イソブチル、(メタ)アクリル酸sec-ブチル、(メタ)アクリル酸t-ブチル、(メタ)アクリル酸ペンチル、(メタ)アクリル酸イソペンチル、(メタ)アクリル酸ネオペンチル、(メタ)アクリル酸ヘキシル、(メタ)アクリル酸ヘプチル、(メタ)アクリル酸オクチル、(メタ)アクリル酸イソオクチル、(メタ)アクリル酸2-エチルヘキシル、(メタ)アクリル酸ノニル、(メタ)アクリル酸イソノニル、(メタ)アクリル酸デシル、(メタ)アクリル酸イソデシル、(メタ)アクリル酸ウンデシル、(メタ)アクリル酸ドデシル等が挙げられる。(メタ)アクリル酸C₄₋₁₂アルキルエステルは単独で又は2種以上組み合わせて使用することができる。

【0016】

(メタ) アクリル酸 C_{4-12} アルキルエステルは、アクリル系重合体における単量体主成分として含有されていることが好ましい。そのため、(メタ) アクリル酸 C_{4-12} アルキルエステルとしては、アクリル系重合体における単量体成分全量に対して50重量%以上の割合であることが重要であり、好ましくは60重量%以上、さらに好ましくは70重量%以上である。なお、(メタ) アクリル酸 C_{4-12} アルキルエステルの含有割合の上限は、特に制限されず、例えば、アクリル系重合体における単量体成分全量に対して100重量% (好ましくは99重量%、さらに好ましくは98重量%) であってもよい。従って、例えば、(メタ) アクリル酸 C_{4-12} アルキルエステルは、単量体成分全量に対して50～98重量%の割合であってもよい。(メタ) アクリル酸 C_{4-12} アルキルエステルの含有割合が単量体成分全量に対して50重量%未満であると、良好な剥離力および凝集力を発揮する粘着剤が得られない場合がある。

【0017】

なお、本発明では、(メタ) アクリル酸 C_{4-12} アルキルエステルとしては、上記例示のものの中でも、アクリル酸ブチル、アクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸イソノニル、アクリル酸ドデシル (アクリル酸ラウリル)、メタクリル酸ブチル、メタクリル酸ドデシル (メタクリル酸ラウリル) が好ましい。

【0018】

アクリル系重合体中に含有される共重合性成分としての共重合性単量体は、(メタ) アクリル酸 C_{4-12} アルキルエステルの種類などに応じて適宜選択される。(メタ) アクリル酸 C_{4-12} アルキルエステルと共重合可能な共重合性単量体としては、例えば、(メタ) アクリル酸メチル、(メタ) アクリル酸エチル、(メタ) アクリル酸 n -プロピル、(メタ) アクリル酸イソプロピルなどの(メタ) アクリル酸 C_{1-3} アルキルエステル；(メタ) アクリル酸トリデシル、(メタ) アクリル酸テトラデシル、(メタ) アクリル酸ペンタデシル、(メタ) アクリル酸ヘキサデシル、(メタ) アクリル酸ステアリルなどの(メタ) アクリル酸 C_{13-18} アルキルエステル；(メタ) アクリル酸シクロヘキシル、(メタ) アクリル酸ボルニル、(メタ) アクリル酸イソボルニルなどの(メタ) アクリル酸脂環式炭

化水素エステル；（メタ）アクリル酸、イタコン酸、マレイン酸、フマル酸、クロトン酸、イソクロトン酸などのカルボキシル基含有単量体又はその無水物；ビニルスルホン酸ナトリウムなどのスルホン酸基含有単量体；スチレン、置換スチレンなどの芳香族ビニル化合物；アクリロニトリルなどのシアノ基含有単量体；エチレン、ブタジエンなどのオレフィン類；酢酸ビニルなどのビニルエステル類；塩化ビニル；アクリルアミド、メタアクリルアミド、N-ビニルピロリドン、N, N-ジメチル（メタ）アクリルアミドなどのアミド基含有単量体；（メタ）アクリル酸ヒドロキシアルキル、グリセリンジメタクリレートなどの水酸基含有単量体；（メタ）アクリル酸アミノエチル、（メタ）アクリロイルモルホリンなどのアミノ基含有単量体；シクロヘキシルマレイミド、イソプロピルマレイミドなどのイミド基含有単量体；（メタ）アクリル酸グリシジル、（メタ）アクリル酸メチルグリシジルなどのエポキシ基含有単量体；2-メタクリロイルオキシエチルイソシアネートなどのイソシアネート基含有単量体などが挙げられる。また、共重合性単量体としては、例えば、トリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ジエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、テトラエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、1, 6-ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、ジビニルベンゼンなどの多官能性の共重合性単量体（多官能モノマー）が用いられていてもよい。共重合性単量体は単独で又は2種以上組み合わせて使用することができる。

【0019】

このような共重合性単量体は、単量体成分全量に対して50重量%未満の含有割合で用いられる。

【0020】

なお、本発明では、前記多官能モノマーに代えて（又は、多官能モノマーと共に）架橋剤を用いることもできる。なお、このような架橋剤は、アクリル系重合体の重合後で且つ被着体に塗工する前に添加して、粘着剤の凝集力を向上させる

ことも可能である。架橋剤としては、通常用いる架橋剤を使用することができ、例えば、水溶性架橋剤や油溶性架橋剤のいずれであってもよい。架橋剤は単独で又は2種以上組み合わせて使用できる。具体的には、水溶性架橋剤としては、例えば、ポリエチレングリコールジグリシジルエーテルなどのエポキシ系架橋剤、水分散型イソシアネート系架橋剤、オキサゾリン系架橋剤、アジリジン系架橋剤、親水化処理カルボジイミド系架橋剤、活性メチロール基や活性アルコキシメチル基を含有する架橋剤、金属キレート系架橋剤、メラミン樹脂系架橋剤、過酸化物系架橋剤などが挙げられる。油溶性架橋剤としては、例えば、N, N, N', N'-テトラグリシジルー-m-キシレンジアミンなどのエポキシ系架橋剤、ヘキサメチレンジイソシアネートなどのイソシアネート系架橋剤、油溶性カルボジイミド系架橋剤などが挙げられる。なお、架橋剤の使用量は、特に制限されず、一般的にアクリル系粘着剤で使用されている量でよい。

【0021】

アクリル系重合体は、前記モノマーを公知乃至慣用の重合方法（特に、乳化重合方法）により調製することができる。また、一般的に、一括仕込み方法（一括重合方法）、モノマー滴下方法、モノマーエマルジョン滴下方法などを採用することができる。モノマーなどを滴下する場合は、連続的に滴下してもよく、分割して滴下してもよい。なお、重合温度は、重合開始剤の種類などに応じて適宜選択することができ、例えば、5～100℃の範囲から選択できる。

【0022】

重合に用いる重合開始剤としては、例えば、2, 2'-アゾビスイソブチロニトリル、2, 2'-アゾビス(2-アミジノプロパン)ジヒドロクロライド、2, 2'-アゾビス[2-(5-メチル-2-イミダゾリン-2-イル)プロパン]ジヒドロクロライド、2, 2'-アゾビス(2-メチルプロピオンアミジン)二硫酸塩、2, 2'-アゾビス(N, N'-ジメチレンイソブチルアミジン)ジヒドロクロライドなどのアゾ系開始剤；過硫酸カリウム、過硫酸アンモニウムなどの過硫酸塩；ベンゾイルパーオキサイド、t-ブチルハイドロパーオキサイド、過酸化水素などの過酸化物系開始剤；過硫酸塩と亜硫酸水素ナトリウムとの組み合わせ、過酸化物とアスコルビン酸ナトリウムとの組み合わせ等の過酸化物と

還元剤とを組み合わせたレドックス系開始剤などが挙げられるが、これらに限定されるものではない。なお、重合開始剤は、水溶性の開始剤であってもよく、油溶性の開始剤であってもよい。重合開始剤の使用量は、その種類やモノマーの種類などに応じて適宜選択できるが、一般には、単量体成分 100 重量部に対して、例えば 0.01～1 重量部程度の範囲から選択することができる。

【0023】

また、重合には連鎖移動剤を用いてもよい。連鎖移動剤を用いることによりアクリル系重合体の分子量を調整することができる。連鎖移動剤としては、慣用の連鎖移動剤、例えば、ラウリルメルカプタン、グリシジルメルカプタン、2-メルカプトエタノール、チオグリコール酸、チオグリコール酸 2-エチルヘキシル、2,3-ジメルカプト-1-プロパノールなどが例示できる。これらは単独で用いてもよく 2 種以上を併用してもよい。連鎖移動剤の使用量は、通常、単量体成分 100 重量部に対して 0.001～0.5 重量部程度である。

【0024】

さらにまた、重合に際して、重合安定性を確保するために、乳化剤を用いることができる。このような乳化剤として、ラウリル硫酸ナトリウム、ラウリル硫酸アンモニウム、ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム、ポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸ナトリウム、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル硫酸アンモニウム、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル硫酸ナトリウム、ポリオキシエチレンアルキルスルホコハク酸ナトリウムなどのアニオン系乳化剤；ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレンブロックポリマーなどのノニオン系乳化剤などを使用できる。また、これらにプロペニル基等のラジカル反応性基が導入されたラジカル重合性の乳化剤を用いることもできる。これらの乳化剤は単独で用いてもよく 2 種以上を併用してもよい。乳化剤の使用量は、重合安定性、機械的安定性の観点から、例えば、単量体成分 100 重量部に対して 0.5 重量部以上が好ましく、1.0 重量部以上がさらに好ましい。一方、耐水性を向上させる観点から、5 重量部以下が好ましく、3 重量部以下がさらに好ましい。

【0025】

アクリル系重合体としては、(メタ)アクリル酸C₄₋₁₂アルキルエステルを単量体の主成分としていれば、単量体の組成やその使用量又は配合割合を適宜選択することができるが、良好な感圧接着性を発現させるためには、得られるポリマーのガラス転移点(T_g)が通常-20℃以下となるように、組成及びその配合割合を決めるのが望ましい。

【0026】

なお、アクリル系重合体の重量平均分子量は、20万以上(例えば、20万～100万)、好ましくは25万～90万、さらに好ましくは30万～80万程度であってもよい。

【0027】

なお、アクリル系粘着剤において、アクリル系重合体は水分散されて含有されている。従って、アクリル系重合体はエマルションの形態で含有されていてもよい。アクリル系重合体がエマルションの形態で含有されている場合、アクリル系重合体を重合して調製する際に、必要に応じて乳化剤を用いることによりエマルション化してもよく、各種重合方法により調製されたアクリル系重合体を乳化剤によりエマルション化してもよい。すなわち、アクリル系重合体を含有するエマルションは、(メタ)アクリル酸C₄₋₁₂アルキルエステルと、必要に応じて共重合性単量体とを用いた乳化重合により得られるアクリル系重合体エマルションであってもよく、乳化重合以外の重合方法によりアクリル系重合体を得た後、乳化剤により水に分散させて調製されたアクリル系重合体エマルションであってもよい。

【0028】

一方、ゴム系の水分散型粘着剤組成物は、主成分として天然ゴムラテックスが含有されているゴム系粘着剤から構成されている。ゴム系粘着剤には、必要に応じて、シャッカイ又はアクリル系モノマーなどがグラフトされている天然ゴムラテックスが添加されていてもよい。

【0029】

なお、水分散型粘着剤組成物において、アクリル系の水分散型粘着剤組成物と

しては、主成分としてアクリル系粘着剤を含有している水分散型粘着剤を用いることができ、また、ゴム系の水分散型粘着剤組成物としては、主成分としてゴム系粘着剤を含有している水分散型粘着剤組成物を用いることができる。

【0030】

アクリル系又はゴム系の水分散型接着剤組成物には、必要に応じて、pHを調整するための塩基（アンモニア水など）や酸の他、粘着剤に通常使用される添加剤、例えば、剥離調整剤、粘着付与剤、可塑剤、軟化剤、充填剤、着色剤（顔料や染料など）、老化防止剤、界面活性剤などが配合されていてもよい。

【0031】

[ポリアルキレングリコール・親水性ポリマー]

本発明の水分散型粘着剤組成物では、重量平均分子量 20,000～5,000,000 のポリアルキレングリコール又は親水性ポリマーが、アクリル系又はゴム系の水分散型粘着剤組成物中の固形分 100 重量部に対して 0.5～15 重量部（好ましくは 1～13 重量部、さらに好ましくは 1.5～10 重量部）含有されている。重量平均分子量 20,000～5,000,000 のポリアルキレングリコール又は親水性ポリマーの含有割合が、水分散型粘着剤組成物中の固形分 100 重量部に対して 0.5 重量部より少ないと、結露面や湿潤面に対する粘着力の向上効果が低下し、定荷重剥離性の向上効果も低下する。一方、15 重量部より多いと、粘着剤の粘度が上昇し、塗工性に影響を及ぼす場合がある。なお、重量平均分子量 20,000～5,000,000 のポリアルキレングリコール又は親水性ポリマーは、アクリル系粘着剤やゴム系粘着剤とともに含有されていれば、いずれの方法により含有されていてもよい。例えば、アクリル系の水分散型粘着剤組成物の場合、アクリル系粘着剤のアクリル系重合体の重合前に含有されていてもよいが、アクリル系重合体の重合に悪影響を及ぼさないようにするために、アクリル系重合体の重合後に、水溶液として添加して含有されていることが好ましい。

【0032】

ポリアルキレングリコールとしては、重量平均分子量が 20,000～5,000,000（好ましくは 100,000～3,000,000、さらに好まし

くは450, 000~1, 000, 000)であることが重要である。ポリアルキレングリコールの重量平均分子量が20, 000未満の場合、結露面や湿潤面に対する粘着力の向上効果が低下するという問題が生じ、一方、重量平均分子量が5, 000, 000を超えると、粘着剤の粘度が上昇し、塗工性に影響を及ぼすという問題が発生する。

【0033】

前記ポリアルキレングリコールとしては、例えば、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコールなどのホモポリマーや、エチレングリコール-プロピレングリコール共重合体などのコポリマーが挙げられる。ポリアルキレングリコールとしては、中でも、添加量、結露面や湿潤面に対する接着力の向上効果、塗工性などのバランスの観点から、ポリエチレングリコールが特に好ましい。

【0034】

親水性ポリマーとしては、ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール及びポリ(メタ)アクリル酸から選択された少なくとも一種のポリマーを用いることができる。前記ポリビニルピロリドンとしては、ホモポリマーとしてのポリビニルピロリドンが好適であるが、ビニルピロリドンと他の共重合性モノマーとのコポリマーも親水性を有していれば用いることが可能である。前記ポリビニルアルコールとしては、公知乃至慣用のポリビニルアルコールを用いることができ、そのケン化度は親水性を有している限り特に制限されない。前記ポリ(メタ)アクリル酸としては、ポリアクリル酸、ポリメタクリル酸などのホモポリマーや、アクリル酸-メタクリル酸共重合体などのコポリマーを用いることができるが、これらの他に、アクリル酸及び／又はメタクリル酸と他の共重合性モノマーとのコポリマーも親水性を有している限り用いることが可能である。これらの親水性ポリマーは単独で又は2種以上組み合わせて使用することができる。

【0035】

親水性ポリマーの重量平均分子量としては、特に制限されず、例えば、 $0.5 \times 10^3 \sim 5 \times 10^6$ (好ましくは $0.8 \times 10^3 \sim 3 \times 10^6$ 、さらに好ましくは $1 \times 10^3 \sim 1 \times 10^6$) 程度の範囲から選択することができる。親水性ポリマー

の重量平均分子量が小さくなると結露面又は湿潤面に対する粘着力の向上効果が低下し、一方、大きくなると粘着剤の粘度が上昇し、塗工性に影響を及ぼすおそれが生じる場合がある。なお、親水性ポリマーの重量平均分子量が、 1×10^3 ～ 1×10^6 であると、結露面や湿潤面に対する接着力の向上効果および塗工性のバランスが特に優れている。

【0036】

親水性ポリマーとしては、その添加量や重量平均分子量、結露面や湿潤面に対する接着力の向上効果、塗工性などのバランスの観点から、ポリビニルピロリドンが特に好ましい。

【0037】

本発明の水分散型粘着剤組成物（すなわち、重量平均分子量 20,000～5,000,000 のポリアルキレングリコール又は、親水性ポリマーを含有している水分散型粘着剤組成物）は、アクリル系又はゴム系の水分散型粘着剤組成物中の固形分 100 重量部に対して、重量平均分子量 20,000～5,000,000 のポリアルキレングリコール又は、ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール及びポリ（メタ）アクリル酸から選択された少なくとも一種の親水性ポリマーを 0.5～15 重量部含有しているので、水分散型粘着剤組成物であるにもかかわらず、結露面や湿潤面に対する良好な初期粘着力を発現でき、また定荷重剥離性にも優れている。また、剥離時に吸水膨潤により溶出した低分子量成分による汚染や、凝集力不足による糊残りは抑制又は防止されている。さらには、水系のアクリル系又はゴム系の粘着剤を用いるので安全性や環境衛生上などの点で望ましい。しかも、アクリル系又はゴム系粘着剤本来の粘着性は、ほとんど又は全く損なわれておらず、アクリル系又はゴム系粘着剤本来の優れた粘着性を発揮することができる。従って、本発明の水分散型粘着剤組成物は、粘着製品における粘着剤層を形成するための水分散型粘着剤として有用である。

【0038】

〔粘着製品〕

本発明の粘着製品には、例えば、粘着テープ、粘着シート、粘着フィルム、粘着ラベル等が含まれる。粘着製品は、前記重量平均分子量 20,000～5,0

00, 000のポリアルキレングリコール又は、前記親水性ポリマーを含有する水分散型粘着剤組成物による粘着剤層を有している。例えば、上記の重量平均分子量20, 000~5, 000, 000のポリアルキレングリコール又は、上記の親水性ポリマーを含有する水分散型粘着剤組成物からなる粘着剤層は、基材の少なくとも片面に形成されていてもよく、剥離フィルム上に形成されていてもよい。すなわち、粘着製品は、上記の重量平均分子量20, 000~5, 000, 000のポリアルキレングリコール又は、上記の親水性ポリマーを含有する水分散型粘着剤組成物からなる粘着剤層を備えていれば、基材を有する粘着製品であってもよく、基材を有しない粘着製品であってもよい。

【0039】

前記基材としては、例えば、ポリオレフィンフィルム（ポリエチレンフィルム、ポリプロピレンフィルム、エチレン-プロピレン共重合体フィルムなど）、ポリエステルフィルム、ポリイミドフィルム、ポリ塩化ビニルフィルム、ポリ酢酸ビニルフィルムなどのプラスチックフィルム；金属箔；多孔性基材などが挙げられる。本発明では、基材としては、多孔性基材を好適に用いることができる。多孔性基材としては、例えば、和紙、クラフト紙、クレープ紙などの紙系の多孔性基材；不織布や織り布などの布系の多孔性基材などが挙げられる。なかでも、粘着製品がマスキングテープである場合は、基材として和紙を用いると、一方、両面テープなどの粘着テープである場合は、基材として不織布を用いると、結露面や湿潤面に対する初期粘着力向上に特に効果的である。

【0040】

和紙としては、叩解された木材パルプ、あるいは該木材パルプに合成短繊維が混抄されたものを好適に用いることができる。前記合成短繊維における合成ポリマーとしては、例えば、ビニロン、ナイロン、ポリエステル、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニルなどの各種合成ポリマーが挙げられる。

【0041】

不織布としては、一般的な繊維と、パルプとを抄紙したものを好適に用いることができる。

【0042】

前記多孔性基材における坪量は、特に制限されないが、例えば、 $5 \sim 200 \text{ g/m}^2$ 程度であってもよい。より具体的には、多孔性基材の坪量としては、多孔性基材が和紙の場合、通常 $20 \sim 100 \text{ g/m}^2$ 程度であり、また、不織布の場合、通常 $10 \sim 20 \text{ g/m}^2$ 程度である。

【0043】

基材の厚みとしては、目的とする粘着製品に応じて適宜選択することができ、例えば、 $5 \sim 300 \mu\text{m}$ 程度であってもよい。より具体的には、基材の厚みとしては、基材が和紙の場合、強度やコシなどの観点から、 $40 \sim 200 \mu\text{m}$ （特に $50 \sim 100 \mu\text{m}$ ）が好ましく、また、不織布の場合、 $30 \sim 50 \mu\text{m}$ が一般的である。

【0044】

なお、基材は単層および複層のいずれの形態を有していてもよい。

【0045】

基材（特に多孔性基材）には、目的によって、含浸処理や目止め処理の他、剥離処理などの各種の公知乃至慣用の処理が施されていてもよい。

【0046】

本発明の粘着製品は、粘着製品の種類に応じて、通常の粘着製品の製造方法に従って製造することができる。例えば、基材を有している粘着製品の場合、上記基材に対して下塗り処理、バックサイズ処理や背面処理などの処理を行い、基材の少なくとも一方の面（片面又は両面）に上記の重量平均分子量 $20,000 \sim 5,000,000$ のポリアルキレングリコール又は、上記の親水性ポリマーを含有する水分散型粘着剤組成物を乾燥後の厚さが $5 \sim 300 \mu\text{m}$ 程度となるように直接塗工して乾燥することにより、またはセパレータ上に乾燥後の厚さが $5 \sim 300 \mu\text{m}$ 程度となるように塗工し乾燥した後、上記基材に転写することにより、粘着製品（ロール状に巻回した粘着テープなど）を作製することができる。

【0047】

なお、水分散型粘着剤組成物の塗工に際しては、慣用のコーター、例えば、グラビヤロールコーター、リバースロールコーター、キスロールコーター、ディップロールコーター、バーコーター、ナイフコーター、スプレーコーターなどを用

いることができる。

【0 0 4 8】

本発明では、粘着剤保護のために粘着剤層上に剥離フィルムを積層しておくのが望ましい。また、剥離フィルムを利用しない場合は、基材の背面にシリコーン系剥離剤や長鎖アルキル系剥離剤などの剥離処理剤により背面処理を施していることが好ましい。

【0 0 4 9】

【発明の効果】

本発明の水分散型粘着剤組成物によれば、結露面や湿潤面に対する良好な初期粘着力を発現でき、且つ良好な定荷重剥離性を発現できる。

【0 0 5 0】

【実施例】

以下に、実施例に基づいて本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例により限定されるものではない。なお、部は重量部を意味する。

（アクリル系粘着剤の調製例）

温度計、攪拌機、窒素導入管及び還流冷却管を備えた反応容器に、アクリル酸 2-エチルヘキシル 4 6 部、アクリル酸ブチル 2. 5 部、アクリロニトリル 1 部、アクリル酸 0. 5 部およびラウリル硫酸ナトリウム 1 部を水 7 5 部で乳化したものを仕込み、攪拌しながら、室温（2 5℃）で 1 時間窒素置換させた。その後、これに 2, 2'-アゾビス（2-アミジノプロパン）ジヒドロクロライド（重合開始剤）を 0. 0 2 5 部加え、温度を 6 0℃にして 3 時間重合した（1 段目の重合）。その後、過硫酸カリウム 0. 1 部をさらに仕込み、アクリル酸 2-エチルヘキシル 4 6 部、アクリル酸ブチル 2. 5 部、アクリロニトリル 1 部、アクリル酸 0. 5 部およびラウリル硫酸ナトリウム 1 部を水 3 3 部で乳化したものを、7 0℃で 3 時間かけて滴下しながら、重合した（2 段目の重合）。さらに、7 5℃で 2 時間熟成した後、室温まで冷却し、1 0 %のアンモニア水で中和することにより、粘着剤（「粘着剤 A」と称する場合がある）を調製した。

【0 0 5 1】

（実施例 1）

粘着剤 A の固形分 100 重量部に対して、ポリエチレングリコール（重量平均分子量 50 万）2 部と、油溶性エポキシ系架橋剤（商品名「テトラッド C」三菱瓦斯化学社製）0.3 部とを添加し、坪量 30 g/m^2 の和紙（基材）の片面に、乾燥後の厚さが $20 \mu\text{m}$ となるように塗布し、乾燥させて、粘着テープを得た。

【0052】

（実施例 2）

粘着剤 A の固形分 100 重量部に対して、ポリビニルピロリドン（重量平均分子量 90 万）10 部と、油溶性エポキシ系架橋剤（商品名「テトラッド C」三菱瓦斯化学社製）0.3 部とを添加し、坪量 30 g/m^2 の和紙（基材）の片面に、乾燥後の厚さが $20 \mu\text{m}$ となるように塗布し、乾燥させて、粘着テープを得た。

【0053】

（実施例 3）

粘着剤 A の固形分 100 重量部に対して、ポリビニルアルコール（重量平均分子量 22,000）5 部と、油溶性エポキシ系架橋剤（商品名「テトラッド C」三菱瓦斯化学社製）0.3 部とを添加し、坪量 30 g/m^2 の和紙（基材）の片面に、乾燥後の厚さが $20 \mu\text{m}$ となるように塗布し、乾燥させて、粘着テープを得た。

【0054】

（実施例 4）

粘着剤 A の固形分 100 重量部に対して、ポリアクリル酸（重量平均分子量 9 万）0.5 部と、油溶性エポキシ系架橋剤（商品名「テトラッド C」三菱瓦斯化学社製）0.3 部とを添加し、坪量 30 g/m^2 の和紙（基材）の片面に、乾燥後の厚さが $20 \mu\text{m}$ となるように塗布し、乾燥させて、粘着テープを得た。

【0055】

（比較例 1）

粘着剤 A の固形分 100 重量部に対して、油溶性エポキシ系架橋剤（商品名「テトラッド C」三菱瓦斯化学社製）0.3 部を添加し、坪量 30 g/m^2 の和紙

(基材)の片面に、乾燥後の厚さが $20\mu\text{m}$ となるように塗布し、乾燥させて、粘着テープを得た。

【0056】

(比較例2)

粘着剤Aの固形分100重量部に対して、ポリエチレングリコール(重量平均分子量1000)0.3部と、油溶性エポキシ系架橋剤(商品名「テトラッドC」三菱瓦斯化学社製)0.3部とを添加し、坪量 $30\text{g}/\text{m}^2$ の和紙(基材)の片面に、乾燥後の厚さが $20\mu\text{m}$ となるように塗布し、乾燥させて、粘着テープを得た。

【0057】

(比較例3)

粘着剤Aの固形分100重量部に対して、ポリエチレングリコール(重量平均分子量1000)10部と、油溶性エポキシ系架橋剤(商品名「テトラッドC」三菱瓦斯化学社製)0.3部とを添加し、坪量 $30\text{g}/\text{m}^2$ の和紙(基材)の片面に、乾燥後の厚さが $20\mu\text{m}$ となるように塗布し、乾燥させて、粘着テープを得た。

【0058】

(評価方法)

実施例1～4および比較例1～3により得られた粘着テープについて、下記の湿潤面粘着力の評価方法、定荷重剥離性の評価方法により、湿潤面粘着力、定荷重剥離性を評価した。

【0059】

(湿潤面粘着力の評価方法)

被着体としてのガラスを、 $23^{\circ}\text{C}\times 65\%\text{RH}$ の恒温恒湿の室内に設置されている設定温度 0°C のボックス内に1時間保管し、その後、ガラスをボックスより取り出し(このとき、ガラス表面は結露状態又は湿潤状態となっている)、10秒後、18mm幅に切断した粘着テープ(実施例1～4及び比較例1～3により得られた粘着テープ)を、2kgのローラーで1往復して貼り合わせ、貼り合わせ10秒後に、剥離速度 $300\text{mm}/\text{min}$ にて 180° 剥離させて、ガラスの

結露面又は湿潤面に対する粘着力（「湿潤面粘着力」と称する場合がある）（N／18mm幅）を測定した。測定結果は表1の「湿潤面粘着力（N／18mm幅）」の欄に示した。

【0060】

（定荷重剥離性の評価方法）

アクリル板に18mm幅に切断した粘着テープを500gのローラーで1往復させて貼り合わせ、30分後、テープ端末に30gの荷重をかけ、90°剥離となるようにアクリル板に固定し、23℃の雰囲気下、1時間当たりの剥離距離を測定した。測定結果は表1の「定荷重剥離性（cm／hr）」の欄に示した。

【0061】

【表1】

表 1

		実 施 例				比 較 例		
		1	2	3	4	1	2	3
親水性 ポリマー	種類	PEG	PVP	PVA	PAA	なし	PEG	PEG
	Mw	50万	90万	22,000	9万	—	1000	1000
	添加量	2	10	5	0.5	—	0.3	10
湿潤面粘着力 (N/18mm幅)		0.6	0.6	0.5	0.5	0.02	0.03	0.2
定荷重剥離性 (cm/hr)		1.5	1.5	0.8	1.2	30	5.0	0.8

- ・PEG：ポリエチレングリコール
- ・PVP：ポリビニルピロリドン
- ・PVA：ポリビニルアルコール
- ・PAA：ポリアクリル酸
- ・Mw：重量平均分子量
- ・親水性ポリマーの添加量は粘着剤Aの固形分100重量部に対する割合（重量部）

【0062】

表1より明らかなように、実施例1～4に係る粘着テープは、比較例1～3にかかる粘着テープよりも、いずれもガラスの結露面又は湿潤面に対する粘着力が優れており、良好な湿潤面に対する粘着力を有していることが確認された。さらに、実施例1～4に係る粘着テープは、定荷重剥離性にも優れていることが確認された。従って、粘着テープの粘着剤層を構成する粘着剤として、アクリル系又はゴム系の水分散型粘着剤組成物中の固形分100重量部に対して、重量平均分子量20,000～5,000,000のポリアルキレングリコールまたは、ポ

リビニルピロリドン、ポリビニルアルコール及びポリ（メタ）アクリル酸から選択された少なくとも一種の親水性ポリマーを 0.5～15 重量部の割合で含有する水分散型粘着剤組成物を用いると、結露面や湿潤面に対して良好な初期粘着力を発現でき、且つ良好な定荷重剥離性を発現できることが確認された。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 結露面や湿潤面に対する良好な初期粘着力を発現でき、また定荷重剥離性に優れた水分散型粘着剤組成物及び粘着製品を得る。

【解決手段】 水分散型粘着剤組成物は、アクリル系又はゴム系の水分散型粘着剤組成物中の固形分 1 0 0 重量部に対して、重量平均分子量 2 0, 0 0 0 ~ 5, 0 0 0, 0 0 0 のポリアルキレングリコールまたは、ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール及びポリ（メタ）アクリル酸から選択された少なくとも一種の親水性ポリマーを 0. 5 ~ 1 5 重量部含有することを特徴とする。前記アクリル系の水分散型粘着剤組成物は、（メタ）アクリル酸 C₄₋₁₂アルキルエステルを単量体主成分とするアクリル系重合体をベースポリマーとして含有していてもよい。粘着製品は、前記水分散型粘着剤組成物による粘着剤層を有することを特徴とする。

【選択図】 なし

特願 2003-034518

出願人履歴情報

識別番号

[000003964]

1. 変更年月日 1990年 8月31日
[変更理由] 新規登録
住 所 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号
氏 名 日東電工株式会社
2. 変更年月日 2003年 5月13日
[変更理由] 名称変更
住所変更
住 所 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号
氏 名 日東電工株式会社